

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-192594

(43)Date of publication of application : 12.07.1994

(51)Int.Cl.

C09C 3/12  
A61K 7/02  
C09C 1/40  
C09C 1/40  
C09C 3/06

(21)Application number : 05-023671

(71)Applicant : TEIKA CORP  
POLA CHEM IND INC

(22)Date of filing : 18.01.1993

(72)Inventor : MIYAZAKI TOSHIMASA  
OOISO YUKA  
NISHIDA SHUJI  
NISHIKATA KAZUHIRO  
SHIOZAWA JUNJI  
NAKAMURA TADAO

(30)Priority

Priority number : 04 40417 Priority date : 29.01.1992 Priority country : JP

(54) WATER-REPELLENT AND OIL-REPELLENT PIGMENT AND POWDERY COSMETIC CONTAINING THE SAME

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a pigment excellent in transparency, smooth slippery feeling and adhesion and useful for powdery cosmetic, etc., by coating the surface of plate-like inorganic powder with a prescribed amount of inorganic oxide and further treating the coated powder with a specific perfluoroalkylsilane.

CONSTITUTION: The pigment is obtained by coating the surface of plate-like inorganic powder such as sericite or mica with an inorganic oxide such as titanium dioxide in an amount of 1-10wt.% based on the plate-like inorganic powder and further, treating the coated powder with a perfluoroalkylsilane of the formula [R is 1-12C perfluoroalkyl; (n) is 1-5; X1 to X3 are alkoxy, halogen or alkyl, excepting when all of X1 to X3 are alkyl]. Furthermore, the pigment is preferably contained in an amount of 1-90% based on the powdery cosmetic.

EPO DG

04.08.2006

(100)

R (CH<sub>2</sub>)<sub>n</sub> Si X<sub>1</sub> X<sub>2</sub> X<sub>3</sub>

### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(54) [Title of the Invention]

WATER-REPELLING AND OIL-REPELLING PIGMENT AND POWDER COSMETIC  
CONTAINING THE SAME

(57) [Abstract]

[Purpose]

To provide a water-repelling and oil-repelling pigment excellent in water repellency and oil repellency, transparency, and good spreading, touch and adhesion properties in the case being mixed in a cosmetic and applied to the skin and a powder cosmetic containing the pigment.

[Constitution]

The water-repelling and oil-repelling pigment is obtained by coating the circumference of a platy inorganic powder with an inorganic oxide at a ratio of 1 to 10% by weight to the platy inorganic powder and further treating the surface of the obtained inorganic powder with a perfluoroalkylsilane defined by the following general formula (I):

$R(CH_2)_nSiX_1X_2X_3$  wherein R denotes a perfluoroalkyl group having 1 to 12 carbon atoms; n is an integer of 1 to 5;  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  may be same or different from one another and independently denote an alkoxy, a halogen, or an alkyl group, except the case where  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  all denote an alkyl group; and the cosmetic is obtained by containing the water-repelling and oil-repelling pigment.

[Claims]

[Claim 1] A water-repelling and oil-repelling pigment obtained by coating the circumference of a platy inorganic powder with an inorganic oxide at a ratio of 1 to 10% by weight to the platy inorganic powder and further treating the surface of the obtained inorganic powder with a perfluoroalkylsilane defined by the following general formula (I):

$R(CH_2)_nSiX_1X_2X_3$  wherein R denotes a perfluoroalkyl group having 1 to 12 carbon atoms; n is an integer of 1 to 5;  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  may be same or different from one another and independently denote an alkoxy, a halogen, or an alkyl group, except the case where  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  all denote an alkyl group.

[Claim 2] The water-repelling and oil-repelling pigment according to claim 1, wherein the platy inorganic powder is sericite or mica and the inorganic oxide is titanium dioxide.

[Claim 3] A powder cosmetic containing a water-repelling and oil-repelling pigment obtained by coating the circumference of a platy inorganic powder with an inorganic oxide at a ratio of 1 to 10% by weight to the platy inorganic powder and further treating the surface of the obtained inorganic powder with a perfluoroalkylsilane defined by the following general formula (I):

$R(CH_2)_nSiX_1X_2X_3$  wherein R denotes a perfluoroalkyl group having 1 to 12 carbon atoms; n is an integer of 1 to 5;  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  may be same or different from one another and independently

denote an alkoxy, a halogen, or an alkyl group, except the case where  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  all denote an alkyl group.

[Claim 4] The powder cosmetic according to claim 3, wherein the platy inorganic powder is sericite or mica and the inorganic oxide is titanium dioxide.

5. The powder cosmetic according to claim 3 or 4, wherein the content of the water-repelling and oil-repelling pigment is 1 to 90% by weight in the entire powder cosmetic.

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Field of the Application]

The invention relates to a water-repelling and oil-repelling pigment and a powder cosmetic containing the pigment. More particularly, the invention relates to a water-repelling and oil-repelling pigment obtained by coating the circumference of a platy inorganic powder with an inorganic oxide and further treating the surface with a perfluoroalkylsilane and excellent in water repellency and oil repellency and a powder cosmetic provided with smooth spreading and adhesion feeling and durable and good fitting cosmetic properties owing to addition of the water-repelling and oil-repelling pigment.

[0002]

[Prior Art]

Various investigations on treatments for making

hydrophilic inorganic powders such as mica and talc hydrophobic have conventionally been made and conversion of the surfaces of hydrophilic inorganic powders into hydrophobic surfaces by treatment with, for example, fatty acids, rosin, silicone oils or the like has been tried.

[0003]

In the case of providing water repellency and oil repellency to the surfaces of inorganic powders, surface treatment for inorganic powder surfaces with fluoroalkyldi(oxyethyl)amine phosphoric acid salt ester (reference to Japanese Patent Application Laid-Open (JP-A) No. 62-250074), treatment of the surface of silica with silazane compounds having perfluoroalkyl group (reference to JP-A No. 2-175759), and the like have been proposed.

[0004]

Further, it is also proposed to treat the surfaces of inorganic powders with perfluoroalkylsilanes and to add the obtained powders to cosmetics (reference to JP-A No. 2-218603).

[0005]

[Problems to be Solved by the Invention]

However, there has been a problem that in the case where a platy inorganic powder such as sericite, mica, talc or the like is treated directly with a perfluoroalkylsilane, since the reactivity of the perfluoroalkylsilane and the platy inorganic powder is low, although provided with good water repellency,

no pigment having excellent oil repellency can be obtained.

[0006]

Further, there has been a problem that in the case where a pigment obtained by treating a platy inorganic powder directly with perfluoroalkylsilane is added to a cosmetic, not only sebum resistance improvement cannot be expected but also the spreading and extending property, which is a preferable characteristic property of the platy inorganic powder, is deteriorated to result in decrease of the adhesion to the skin and give no durable and fitting cosmetic property.

[0007]

On the other hand, an inorganic oxide such as titanium dioxide and alumina has a good reactivity with a perfluoroalkylsilane and as compared with a pigment obtained in the case where the surface of a platy inorganic powder such as sericite and mica is directly treated with a perfluoroalkylsilane, a pigment excellent in the oil repellency can be obtained in the case where the surface of such an inorganic oxide is treated with a perfluoroalkylsilane.

[0008]

Therefore, it is supposed that a platy pigment excellent in the oil repellency can be obtained by coating the circumference of a platy inorganic powder with an inorganic oxide such as titanium dioxide and further treating the surface with a perfluoroalkylsilane.

[0009]

Also, the above-mentioned JP-A No. 2-218603 discloses materials obtained by coating the circumference of mica with titanium oxide and treating the surface of the obtained titanium-coated mica with a perfluoroalkylsilane.

[0010]

However, the materials disclosed in JP-A No. 2-218603 are produced not on the basis of the concept of the improvement of the oil repellency by coating the circumference of mica with titanium dioxide in the case of surface treatment with the perfluoroalkylsilane and the above-mentioned titanium-coated mica is only one example of many inorganic pigments to be surface treated with the perfluoroalkylsilane.

[0011]

Further, the titanium-coated mica to be used in JP-A No. 2-218603 is a commonly commercialized material having a high coating amount of titanium dioxide in order to strongly exhibit the pearly luster caused by reflected light interference and therefore, the transparency which the platy inorganic powder has is worsened and therefore it is not suitable for a cosmetic like a foundation for preventing sunburn for which brightness is rather undesirable and due to the thick coating layer of titanium dioxide, the smoothly spreading property and good touch of the platy inorganic powder are also lost.

[0012]



Accordingly, the invention aims to provide a water-repelling and oil-repelling pigment exhibiting practically no pearly luster and brightness, excellent in water repellency and oil repellency, transparency, and good spreading, touch and adhesion properties in the case being mixed in a cosmetic and applied to the skin and a powder cosmetic containing the pigment excellent in durable and good fitting cosmetic properties.

[0013]

[Means for Solving the Problems]

The inventors of the invention have made various investigations to accomplish the above-mentioned aims and have found that the aims can be accomplished by coating the circumference of a platy inorganic powder such as sericite with a prescribed amount of an inorganic oxide and further treating the surface of the obtained powder with a perfluoroalkylsilane and accordingly have completed the invention.

[0014]

That is, the invention provides a water-repelling and oil-repelling pigment obtained by coating the circumference of a platy inorganic powder with an inorganic oxide at a ratio of 1 to 10% by weight to the platy inorganic powder and further treating the surface of the obtained inorganic powder with a perfluoroalkylsilane defined by the following general formula (I):

$R(CH_2)_nSiX_1X_2X_3$  wherein R denotes a perfluoroalkyl group having 1 to 12 carbon atoms; n is an integer of 1 to 5;  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  may be same or different from one another and independently denote an alkoxy, a halogen, or an alkyl group, except the case where  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  all denote an alkyl group; and a cosmetic contains the water-repelling and oil-repelling pigment.

[0015]

Hereinafter, the invention will be described in detail.

[0016]

In the water-repelling and oil-repelling pigment of the invention, the inorganic oxide for coating the circumference of the platy inorganic powder is an oxide excellent in the reactivity with the perfluoroalkylsilane to treat the surface thereof and suitable for making the pigment to be obtain excellent in the oil repellency.

[0017]

The coating amount of the inorganic oxide is in a range from 1 to 10% by weight to the platy inorganic powder and is proper not to worsen good properties such as the transparency, and spreading, touch, and adhesion properties of the platy inorganic powder.

[0018]

The perfluoroalkylsilane used for treating the surface of the above-mentioned inorganic oxide itself has excellent water repellency and oil repellency and gives water repellency

and oil repellency to the pigment to be obtained.

[0019]

Accordingly, the water-repelling and oil-repelling pigment of the invention is excellent in water repellency and oil repellency and keeps the transparency and the good spreading, touch, and adhesion properties of the platy inorganic powder when being mixed in a cosmetic.

[0020]

The platy inorganic powder to be a substrate of the water-repelling and oil-repelling pigment of the invention may include those which are platy and transparent and examples preferable to be used as the platy inorganic powder are natural platy inorganic powder such as sericite, mica, and talc; synthetic mica such as tetrasilicic fluoro mica and taeniolite; and synthetic platy inorganic powder such as glass flakes.

[0021]

The platy inorganic powder is preferable to have an average particle diameter of 3 to 50  $\mu\text{m}$ .

[0022]

The inorganic oxide may include those which have high reactivity with the perfluoroalkylsilane and examples preferable to be used as the inorganic oxide are titanium dioxide, aluminum oxide, zirconium oxide, alumina-silica, and alumina-zirconia.

[0023]

In the invention, the coating amount of the inorganic oxide to the platy inorganic powder is adjusted to be 1 to 10% by weight and the reason is as follows. That is, in the case where the coating amount of the inorganic oxide to the platy inorganic powder is lower than 1% by weight, sufficient reactivity with the perfluoroalkylsilane for treating the surface thereof cannot be obtained and therefore oil repellency cannot be improved. In the case where the coating amount of the inorganic oxide to the platy inorganic powder is higher than 10% by weight, the transparency and the good spreading, touch, and adhesion properties of the platy inorganic powder when the powder is mixed in a cosmetic are worsened.

[0024]

A method for coating the platy inorganic powder with the inorganic oxide may be, for example, a method involving adding a water-based suspension of the platy inorganic powder to a solution of a water-soluble salt of metal composing the inorganic oxide such as titanyl sulfate; thermally hydrolyzing the resulting solution; and thereby depositing the inorganic oxide on the circumference of the platy inorganic powder.

[0025]

The perfluoroalkylsilane to be used in the invention, as described above, may be those which are defined by the following general formula (I):

$R(CH_2)_nSiX_1X_2X_3$  wherein R denotes a perfluoroalkyl group having

1 to 12 carbon atoms; n is an integer of 1 to 5;  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  may be same or different from one another and independently denote an alkoxy, a halogen, or an alkyl group, except the case where  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  all denote an alkyl group.

[0026]

In the perfluoroalkylsilane defined by the above general formula (I), an alkoxy and a halogen among an alkoxy, a halogen, and an alkyl group denoted by  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  are factors exhibiting the reactivity with the inorganic oxide coating the circumference of the platy inorganic powder.

[0027]

Examples of these R,  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  will be exemplified more practically. Examples of R may be  $CF_3$ ,  $C_2F_5$ ,  $C_4F_9$ ,  $C_8F_{17}$ , and  $C_{12}F_{25}$ . Also, examples of  $X_1$ ,  $X_2$ , and  $X_3$  may be Cl, Br, methoxy, ethoxy, propoxy, methyl, ethyl, and propyl.

[0028]

Practical examples preferably usable as the perfluoroalkylsilane defined by the general formula(I) are  $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2Si(OCH_3)_3$ ,  $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2SiCl_3$ ,  $CF_3(CF_2)_7CH_2CH_2Si(OCH_3)_3$ ,  $CF_3(CF_2)_7CH_2SiCH_3(OCH_3)_2$ ,  $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2CH_2Si(OCH_2CH_3)_3$ ,  $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2SiCH_3(OCH_2CH_3)_2$ ,  $CF_3CH_2CH_2SiCl_3$ ,  $CF_3CF_2CH_2CH_2Si(OCH_3)_3$ , and  $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2Si(OCH_3)_3$ .

[0029]

The treatment amount of the perfluoroalkylsilane defined

by the general formula (I) to be used for the inorganic oxide-coated platy inorganic powder (the platy inorganic powder whose circumference is coated with the inorganic oxide) differs depending on the type and the specific surface area of the platy inorganic powder and the type of the inorganic oxide coating the circumference of the platy inorganic powder, however generally it is 0.1 to 50% by weight, particularly preferably 3 to 20% by weight, to the inorganic oxide-coated platy inorganic powder.

[0030]

That is, if it is lower than 0.1% by weight of the perfluoroalkylsilane defined by the general formula (I) to the inorganic oxide-coated platy inorganic powder, sufficient water repellency and oil repellency cannot be obtained and if it is more than 50% by weight of the perfluoroalkylsilane defined by the general formula (I) to the inorganic oxide-coated platy inorganic powder, the spreading and touch properties may be worsened in the case where the obtained powder is mixed with a cosmetic and applied to the skin.

[0031]

The method for treating the inorganic oxide-coated platy inorganic powder with the perfluoroalkylsilane defined by the general formula (I) may be carried out by, for example, adding and evenly dispersing the perfluoroalkylsilane defined by the general formula (I) to the above-mentioned inorganic

oxide-coated platy inorganic powder while mixing the inorganic powder with a solvent in a mixing and stirring apparatus such as a ball mill, a sand grinder mill, a kneader, or a dispersing apparatus; successively heating and drying the mixture at a normal pressure or a reduced pressure; and thereby removing the solvent.

[0032]

Next, the powder cosmetic of the invention will be described in detail.

[0033]

The powder cosmetic of the invention contains the above-mentioned water-repelling and oil-repelling pigment in an amount of preferably 1 to 90% by weight, particularly preferably 3 to 30% by weight, in the entire powder cosmetic.

[0034]

That is, if the content of the water-repelling and oil-repelling pigment in the powder cosmetic is lower than 1% by weight, it can neither be expected much to provide the water repellency and oil repellency to the cosmetic film nor be expected much to improve the durable and good fitting cosmetic properties owing to the smoothly spreading and extending and good adhesion properties. The upper limit of the content of the water-repelling and oil-repelling pigment in the powder cosmetic is not necessarily limited, however it is preferable to suppress the content to be 90% by weight or less in terms

of other components to be added to the powder cosmetic, e.g. oil component and pigments other than the water-repelling and oil-repelling pigment.

[0035]

The powder cosmetic of the invention means those containing the oils dispersed in a pedicular state or a funicular state and containing a pigment and/or a powder in a content of about 55% by weight or higher.

[0036]

The invention provide a powder cosmetic provided with water repellency and oil repellency and effectively exhibiting the durable and good fitting cosmetic properties owing to addition of the water-repelling and oil-repelling pigment.

[0037]

Practical examples of the powder cosmetic provided in the above-mentioned manner are make-up cosmetics such as a pressed powder, a powder foundation, a face powder, a two-way cake, a powder eye color, a powder cheek, and a powder lip as well as Dusting powder, talcum powder, and baby powder.

[0038]

Beside the water-repelling and oil-repelling pigment as the indispensable component, the powder cosmetic of the invention may contain various kinds of powders, pigments, oil agents, medicinal ingredients, preservative, perfume and the like based on necessity.



[0039]

[Effects of the Invention]

The water-repelling and oil-repelling pigment of the invention is excellent in water repellency and oil repellency, so that in the case where it is added to a cosmetic and applied to the skin, it can prevent make-up deterioration due to sweat, tear, rain or the like.

[0040]

Also, since the water-repelling and oil-repelling pigment of the invention has the transparency and the good spreading, touch and adhesion properties of the platy inorganic powder used as the base material, in the case where it is added to a cosmetic, it does not affect the color tone of the cosmetic and improves the spreading and good touch properties on the skin as well as the good adhesion property.

[0041]

Accordingly, the powder cosmetic of the invention containing the water-repelling and oil-repelling pigment gives the smoothly spreading feeling and adhesion feeling and is excellent in the cosmetic durable and good adhesion property when it is applied to the skin, owing to the excellent water repellency and oil repellency of the water-repelling and oil-repelling pigment and the transparency and the good spreading, touch and adhesion properties of the platy inorganic powder as the base material.

[0042]

Further, the water-repelling and oil-repelling pigment of the invention can preferably be used not only for the above-mentioned cosmetic but also materials required to have water repellency and oil repellency such as a ultrahigh water resistant coating material, a freezing preventive coating material, and a filler for fluoro resins.

[0043]

[Example]

Next, the invention will be more specifically described with reference to the examples. However, it is not intended that the invention be limited to these examples. The water-repelling and oil-repelling pigment of the invention will be explained in Examples 1 to 4 and the powder cosmetic of the invention will be described in Examples 5 to 22. Prior to description of Examples, production of 3% titanium dioxide-coated sericite (sericite whose circumference is coated with titanium dioxide and the coating amount of the titanium dioxide to the sericite is 3% by weight) and 5% titanium dioxide-coated sericite (sericite whose circumference is coated with titanium dioxide and the coating amount of the titanium dioxide to the sericite is 5% by weight) which are to be used in Examples 1 and 2, will be described in Reference Example 1 and Reference Example 2, respectively.

[0044]

#### Reference Example 1

At first, 291 g of commercialized sericite (average particle diameter 5  $\mu\text{m}$ ) was added to 1 liter of an aqueous titanyl sulfate solution (concentration on the basis of  $\text{TiO}_2 = 9 \text{ g/l}$ ) and the resulting solution was heated and boiled for 3 hours while being stirred. On completion of the heating, the obtained dispersion was filtered and washed to obtain titanium oxide-coated sericite. The obtained titanium oxide-coated sericite was again dispersed in water and the re-dispersed dispersion was heated to 60°C while being stirred and neutralized to pH 7.0 with an aqueous sodium hydroxide solution and stirred further for 30 minutes and then filtered and the obtained product was washed.

[0045]

The obtained product was dried and calcined at 800°C to obtain 3% titanium dioxide-coated sericite.

[0046]

#### Reference Example 2

The 5% titanium dioxide-coated sericite was obtained in the same manner as Reference Example 1, except that the concentration of the aqueous titanyl sulfate solution on the basis of  $\text{TiO}_2$  was changed to 15 g/l and 285 g of sericite was added.

[0047]

#### Example 1

A table kneader with an inner capacity of 1 l was loaded with 250 g of toluene and while being stirred, 5 g of perfluoroalkylsilane (trade name: TSL-8233;  $\text{CF}_3(\text{CF}_2)_7\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$ , manufactured by Toshiba Silicone Co., Ltd.)) was added and 100 g of the 3% titanium dioxide-coated sericite produced in Reference Example 1 was added and the resulting mixture was sufficiently stirred to obtain a slurry.

[0048]

The slurry was heated to 110°C and toluene was removed while reducing the pressure to 200 mmHg and the slurry was cured at 150°C for 3 hours and successively, the obtained product was pulverized to a fine powder.

[0049]

The amount of the perfluoroalkylsilane was 5% by weight in the 3% titanium dioxide-coated sericite in the water-repelling and oil-repelling pigment obtained in the above-mentioned manner.

[0050]

#### Example 2

A sand grinder mill with an inner capacity of 1 l was loaded with 350 g of toluene, 50 g of the 5% titanium dioxide-coated sericite, and 2.5 g of the same perfluoroalkylsilane as that used in Example 1 and the resulting mixture was stirred for 20 minutes to obtain a slurry.

[0051]

The obtained slurry was transferred to a table kneader and heated to 110°C and subjected to the same treatment as the treatment in Example 1 to obtain water-repelling and oil-repelling pigment.

[0052]

The amount of the perfluoroalkylsilane was 5% by weight in the 5% titanium dioxide-coated sericite in the obtained water-repelling and oil-repelling pigment.

[0053]

#### Example 3

A water-repelling and oil-repelling pigment was obtained in the same manner as Example 1, except that 5% titanium dioxide-coated mica (trade name: SP-301, manufactured by Tayca Corp.) in place of the 3% titanium dioxide-coated sericite used in Example 1.

[0054]

The amount of the perfluoroalkylsilane was 5% by weight in the 5% titanium dioxide-coated mica in the obtained water-repelling and oil-repelling pigment.

[0055]

#### Comparative Example 1

A table kneader with an inner capacity of 1 l was loaded with 283 g of toluene and while being stirred, 7.3 g of perfluoroalkylsilane same as that used in Example 1 was added and 146 g of commercialized sericite (the sericite before

coating with titanium dioxide used in Reference Example 1) was added and the resulting mixture was stirred for 10 minutes and the obtained slurry was heated to 110°C and toluene was removed while reducing the pressure to 200 mmHg and the slurry was cured at 150°C for 3 hours and successively, the obtained product was pulverized.

[0056]

#### Comparative Example 2

A sand grinder mill with an inner capacity of 1 l was loaded with 350 g of toluene, 50 g of titanium dioxide (trade name; JA-1, manufactured by Tayca Corp.), and 2.5 g of the same perfluoroalkylsilane as that used in Example 1 and the resulting mixture was stirred for 20 minutes to obtain a slurry.

[0057]

The obtained slurry was transferred to a table kneader and heated to 110°C and toluene was removed while reducing the pressure to 200 mmHg and the slurry was cured at 150°C for 3 hours and successively, the obtained product was pulverized.

[0058]

#### Comparative Example 3

The same treatment as the treatment in Example 1 was carried out, except that 2 g of methylhydrodiene polysiloxane was used in place of 5 g of the perfluoroalkylsilane used in Example 1.

[0059]

Next, water repellency and oil repellency of the water-repelling and oil-repelling pigments obtained in Examples 1 to 3, pigments of Comparative Examples 1 to 3, untreated samples 1 to 3 were investigated and the results are shown in Table 1 to Table 3.

[0060]

The untreated sample 1 was sericite and it is the same sericite in Reference Example 1 before coating with titanium dioxide. The untreated sample 2 was 3% titanium dioxide-coated sericite same as that used in Example 1. The untreated sample 3 was 5% titanium dioxide-coated mica (trade name: SP-301, manufactured by Tayca Corp.) same as that used in Example 3.

[0061]

The water repellency was the property investigated to water and the oil repellency was the property investigated to oleic acid and toluene.

[0062]

The tests and evaluation methods of the water repellency and oil repellency are as follows.

[0063]

<Test and Evaluation Method>

At first, 0.1 g of each sample was put in a test tube and a solvent (in the case of the water repellency test, water; and in the case of the oil repellency test, oleic acid and toluene) was added to disperse the sample therein and the dispersion was

kept still for a prescribed period as shown in Table 1 to Table 3 and the thickness of the powder floating on the top of the solvent ( $L_1$ ) and the thickness of the powder precipitated in the bottom of the solvent ( $L_2$ ) were respectively measured and as shown in the following formula, the ratio of the thickness of the floating powder ( $L_1$ ) to the total thickness ( $L_1 + L_2$ ) was calculated and the calculated value was used as the water repellency index or the oil repellency index to evaluate these properties.

$$[L_1/(L_1 + L_2)] \times 10$$

[0064]

That is, in the case where the water repellency index or the oil repellency index calculated according to the above-mentioned formula is 10, the powder is completely floating on the top of the solvent and it shows excellent water repellency and oil repellency. On the other hand, in the case where the water repellency index or the oil repellency index calculated according to the above-mentioned formula is 0, the powder is completely precipitated in the bottom of the solvent and it shows no water repellency or oil repellency. That is, water repellency or oil repellency is more excellent as the water repellency index or the oil repellency index is higher.

[0065]

[Table 1]



|                       | Water repellency index |                  |                  |                  |
|-----------------------|------------------------|------------------|------------------|------------------|
|                       | Kept still for 1       | Kept still for 1 | Kept still for 2 | Kept still for 1 |
|                       | hour                   | day              | days             | month            |
| Example 1             | 10                     | 10               | 10               | 10               |
| Example 2             | 10                     | 10               | 10               | 10               |
| Example 3             | 10                     | 10               | 10               | 10               |
| Comparative Example 1 | 10                     | 10               | 10               | 10               |
| Comparative Example 2 | 10                     | 10               | 10               | 9                |
| Comparative Example 3 | 10                     | 10               | 10               | 9                |
| Untreated sample 1    | 0                      | 0                | 0                | 0                |
| Untreated sample 2    | 0                      | 0                | 0                | 0                |
| Untreated sample 3    | 0                      | 0                | 0                | 0                |

[0066]

As shown in Table 1, Examples 1 to 3 have high water repellency indexes as compared with those of untreated samples 1 to 3 and thus are excellent in water repellency. In this connection, with respect to the water repellency, there is scarce difference between Examples 1 to 3 and Comparative Examples 1 to 3.

[0067]

[Table 2]

|                       | Oil repellency index (to oleic acid) |                |                |                |
|-----------------------|--------------------------------------|----------------|----------------|----------------|
|                       | Kept still for                       | Kept still for | Kept still for | Kept still for |
|                       | 1 hour                               | 1 day          | 2 days         | 1 month        |
| Example 1             | 10                                   | 10             | 10             | 10             |
| Example 2             | 10                                   | 10             | 10             | 10             |
| Example 3             | 10                                   | 10             | 10             | 10             |
| Comparative Example 1 | 6                                    | 0              | 0              | 0              |
| Comparative Example 2 | 10                                   | 10             | 10             | 10             |
| Comparative Example 3 | 7                                    | 3              | 0              | 0              |
| Untreated sample 1    | 5                                    | 2              | 0              | 0              |
| Untreated sample 2    | 6                                    | 0              | 0              | 0              |
| Untreated sample 3    | 6                                    | 1              | 0              | 0              |

[0068]

As shown in Table 2, Examples 1 to 3 have high oil repellency indexes and are found having the excellent oil repellency to oleic acid same as that of Comparative Example 2 in which titanium dioxide surface was treated with the perfluoroalkylsilane.

[0069]

[Table 3]

|                       | Oil repellency index (to toluene) |                |                |                |
|-----------------------|-----------------------------------|----------------|----------------|----------------|
|                       | Kept still for                    | Kept still for | Kept still for | Kept still for |
|                       | 1 hour                            | 1 day          | 2 days         | 1 month        |
| Example 1             | 10                                | 10             | 10             | 10             |
| Example 2             | 10                                | 10             | 10             | 10             |
| Example 3             | 10                                | 10             | 10             | 10             |
| Comparative Example 1 | 0                                 | 0              | 0              | 0              |
| Comparative Example 2 | 10                                | 10             | 10             | 10             |
| Comparative Example 3 | 8                                 | 4              | 0              | 0              |
| Untreated sample 1    | 0                                 | 0              | 0              | 0              |
| Untreated sample 2    | 0                                 | 0              | 0              | 0              |
| Untreated sample 3    | 0                                 | 0              | 0              | 0              |

[0070]

As shown in Table 3, Examples 1 to 3 have high oil repellency indexes and are found having the excellent oil repellency to toluene same as that of Comparative Example 2 in which titanium dioxide surface was treated with the perfluoroalkylsilane.

[0071]

As being made clear from the results of the above-mentioned Table 1 to Table 3, the water-repelling and oil-repelling pigments of Examples 1 to 3 of the invention have both high water repellency indexes and oil repellency indexes and thus are found excellent in water repellency and oil

repellency.

[0072]

Next, the transparency of the water-repelling and oil-repelling pigments of the invention will be made clear. To make transparency clear, the following water-repelling and oil-repelling pigment of Example 4 was produced by treating the surface of 10% titanium dioxide-coated sericite with a perfluoroalkylsilane and a pigment of Comparative Example 4 was produced by treating the surface of 20% titanium dioxide-coated sericite with a perfluoroalkylsilane.

[0073]

#### Example 4

In the same manner as Reference Example 1, 10% titanium dioxide-coated sericite (sericite whose circumference is coated with titanium dioxide and the coating amount of the titanium dioxide to the sericite is 10% by weight) was produced by coating the circumference of sericite with titanium dioxide and a water-repelling and oil-repelling pigment was produced in the same manner as Example 1, except that the 10% titanium dioxide-coated sericite was used in place of the 3% titanium dioxide-coated sericite in Example 1. The amount of the perfluoroalkylsilane was 5% by weight in the 10% titanium dioxide-coated sericite in the obtained water-repelling and oil-repelling pigment.

[0074]

#### Comparative Example 4

In the same manner as Reference Example 1, 20% titanium dioxide-coated sericite (sericite whose circumference is coated with titanium dioxide and the coating amount of the titanium dioxide to the sericite is 20% by weight) was produced and a water-repelling and oil-repelling pigment was produced by coating the circumference of sericite with titanium dioxide in the same manner as Example 1, except that the 20% titanium dioxide-coated sericite was used in place of the 3% titanium dioxide-coated sericite in Example 1. The amount of the perfluoroalkylsilane was 5% by weight in the 20% titanium dioxide-coated sericite in the obtained water-repelling and oil-repelling pigment.

[0075]

The measurement method and results of the transparency are as follows.

[0076]

#### <Measurement Method of Transparency>

Samples of water-repelling and oil-repelling pigments of Examples 1 and 2, Example 4, Comparative Example 1, and Comparative Example 4 for which sericite was used as the platy inorganic powder were used and how the transmittance of visible light would be changed in accordance with the coating amount of titanium dioxide coating the circumference of sericite was investigated to make the transparency of the water-repelling

and oil-repelling pigments of Examples 1 and 2 and Example 4 of the invention clear.

[0077]

A nitrocellulose coating material with the following composition was produced using 2 g of each sample and the obtained coating material was applied to a cellophane by a 1.5 mill applicator and the coating after dried was subjected to measurement of the light transmittance to light with wavelength of 400 nm and 500 nm by a spectrophotometer equipped with an integrating sphere.

[0078]

<Coating material composition and preparation>

|   |     |
|---|-----|
| Nitrocellulose solution (solid matter 20.8%)                  | 30g |
| Sample  | 2g  |
| Alumina beads   | 50g |
| (Pigment solid matter weight/resin solid matter weight = 0.3) |     |

[0079]

Each coating material was produced by putting the respective components in the above-mentioned amounts in a container and dispersing them for 20 minutes by a paint conditioner.

[0080]

The measurement results of the light transmittance are shown in Table 4. It is found that as the light transmittance shown in Table 4 is higher, the transparency of a sample is

better.

[0081]

[Table 4]

|                       | Coating amount of titanium dioxide<br>(% by weight) | Light transmittance (%) |       |
|-----------------------|---|-------------------------|-------|
|                       |   | 400nm                   | 500nm |
| Comparative Example 1 | 0   | 90                      | 86    |
| Example 1             | 3   | 89                      | 84    |
| Example 2             | 5   | 88                      | 83    |
| Example 4             | 10  | 82                      | 70    |
| Comparative Example 4 | 20  | 63                      | 47    |

[0082]

As being understood from the results shown in Table 4, as the coating amount of the titanium dioxide coating the surface of sericite is increased more, the transparency to visible light is decreased more, however in Examples 1 and 2 and Example 4, high light transmittance values are kept and it may be said that the transparency is in a sufficient range.

[0083]

In the case of Comparative Example 4 in which the coating amount of titanium dioxide was 20% by weight, the light transmittance is considerably decreased and accordingly, it is found that Comparative Example 2 in which the surface of titanium dioxide was treated with the perfluoroalkylsilane has low transmittance to visible light and is scarcely transparent.

[0084]

Next, powder cosmetic containing a water-repelling and oil-repelling pigment of the invention will be described along with Examples. The mixing ratios of the components are shown on the basis of % by weight.

[0085]

Examples 5 to 13

(Powder foundation)

The components of the compositions shown in Table 5 and Table 6 were mixed by a Henshel mixer at 1,500 rpm for 1 minute and pulverized by a pulverizer using a round mesh with 0.7 to 1.0 mm mesh holes. Next, the pulverized products were mixed with oil agents by a Henshel mixer at 1,500 rpm for 10 minutes and successively pulverized by a pulverizer using a herringbone type mesh with a size of 1.5 to 2 mm and press-compacted to obtain powder foundations. The compositions of the powder foundations of Examples 5 to 9 are shown in Table 5 and the compositions of the powder foundations of Examples 10 to 13 are shown in Table 6.

[0086]

[Table 5]



| Component |                      | Example |      |      |      |      |
|-----------|----------------------|---------|------|------|------|------|
|           |                      | 5       | 6    | 7    | 8    | 9    |
| Powder    | Pigment of Example 1 | 1       | -    | -    | 20   | -    |
|           | Pigment of Example 2 | -       | 1    | -    | -    | 20   |
|           | Pigment of Example 3 | -       | -    | 1    | -    | -    |
|           | Talc                 | 46.4    | 46.4 | 46.4 | 27.4 | 27.4 |
|           | Sericite             | 5       | 5    | 5    | 5    | 5    |
|           | Titanium dioxide     | 20      | 20   | 20   | 20   | 20   |
|           | Yellow iron oxide    | 5.5     | 5.5  | 5.5  | 5.5  | 5.5  |
|           | Red iron oxide       | 2.4     | 2.4  | 2.4  | 2.4  | 2.4  |
|           | Ultramarine          | 0.5     | 0.5  | 0.5  | 0.5  | 0.5  |
|           | Nylon powder         | 5       | 5    | 5    | 5    | 5    |
|           | Methylparaben        | 0.2     | 0.2  | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| Oil agent | Squalen              | 7       | 7    | 7    | 7    | 7    |
|           | Silicone oil         | 4       | 4    | 4    | 4    | 4    |
|           | Liquid paraffin      | 3       | 3    | 3    | 3    | 3    |

[0087]

[Table 6]

| Component |                      | Example |      |      |      |
|-----------|----------------------|---------|------|------|------|
|           |                      | 10      | 11   | 12   | 13   |
| Powder    | Pigment of Example 1 | -       | 35   | -    | -    |
|           | Pigment of Example 2 | -       | -    | 35   | -    |
|           | Pigment of Example 3 | 20      | -    | -    | 35   |
|           | Talc                 | 27.4    | 12.4 | 12.4 | 12.4 |
|           | Sericite             | 5       | 5    | 5    | 5    |
|           | Titanium dioxide     | 20      | 20   | 20   | 20   |
|           | Yellow iron oxide    | 5.5     | 5.5  | 5.5  | 5.5  |
|           | Red iron oxide       | 2.4     | 2.4  | 2.4  | 2.4  |
|           | Ultramarine          | 0.5     | 0.5  | 0.5  | 0.5  |
|           | Nylon powder         | 5       | 5    | 5    | 5    |
|           | Methylparaben        | 0.2     | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| Oil agent | Squalen              | 7       | 7    | 7    | 7    |
|           | Silicone oil         | 4       | 4    | 4    | 4    |
|           | Liquid paraffin      | 3       | 3    | 3    | 3    |

[0088]

Comparative Examples 5 to 8

(Powder foundation)

Powder foundations of Comparative Examples 5 to 8 were obtained in the same manner as Examples 5 to 13 using the components of the compositions shown in Table 7.

[0089]

[Table 7]

| Component |                      | Comparative Example |      |      |      |
|-----------|----------------------|---------------------|------|------|------|
|           |                      | 5                   | 6    | 7    | 8    |
| Powder    | Pigment of Example 1 | -                   | 20   | -    | -    |
|           | Pigment of Example 2 | -                   | -    | 20   | -    |
|           | Pigment of Example 3 | -                   | -    | -    | 20   |
|           | Talc                 | 27.4                | 27.4 | 27.4 | 27.4 |
|           | Sericite             | 25                  | 5    | 5    | 5    |
|           | Titanium dioxide     | 20                  | 20   | 20   | 20   |
|           | Yellow iron oxide    | 5.5                 | 5.5  | 5.5  | 5.5  |
|           | Red iron oxide       | 2.4                 | 2.4  | 2.4  | 2.4  |
|           | Ultramarine          | 0.5                 | 0.5  | 0.5  | 0.5  |
|           | Nylon powder         | 5                   | 5    | 5    | 5    |
|           | Methylparaben        | 0.2                 | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| Oil agent | Squalen              | 7                   | 7    | 7    | 7    |
|           | Silicone oil         | 4                   | 4    | 4    | 4    |
|           | Liquid paraffin      | 3                   | 3    | 3    | 3    |

[0090]

With respect to the powder foundations of Examples 5 to 13 and the powder foundations of Comparative Examples 5 to 8 obtained in the above-mentioned manner, the smooth cosmetic application and durability were evaluated by sensory tests by 20 panelists of make-up experts.

[0091]

The sensory evaluation test methods and evaluation standards were as follows.

<Test Methods and Evaluation Standards>

Each powder foundation was applied to the entire face and the smooth cosmetic application at the time of application and cosmetic durability three hours after application were evaluated by sensory evaluation on the basis of the following evaluation standards and the average values were employed for the comprehensive evaluation. The results are shown in Table 8.

[0092]

Evaluation standards of smooth cosmetic application

5: smooth and beautiful adhesion

1: inferior application and adhesion

The evaluation values of the intermediate grades 2 to 4 were determined on the basis of the above grades 1 to 5 in accordance to the extent of the smooth application.

[0093]

Evaluation standards of cosmetic durability

5: neither separation of cosmetic nor glittering

1: separation of cosmetic and glittering and unshaped

The evaluation values of the intermediate grades 2 to 4 were determined on the basis of the above grades 1 to 5 in accordance to the extent. The glittering means the shining due to the wetting of the cosmetic film with sebum.

[0094]

[Table 8]

|                       | Powder foundation           |                     |
|-----------------------|-----------------------------|---------------------|
|                       | Smooth cosmetic application | Cosmetic durability |
| Example 5             | 3.9                         | 4.0                 |
| Example 6             | 4.0                         | 4.1                 |
| Example 7             | 4.0                         | 4.1                 |
| Example 8             | 4.2                         | 4.8                 |
| Example 9             | 4.3                         | 4.8                 |
| Example 10            | 4.2                         | 4.8                 |
| Example 11            | 4.5                         | 4.9                 |
| Example 12            | 4.3                         | 4.8                 |
| Example 13            | 4.5                         | 4.8                 |
| Comparative Example 5 | 3.6                         | 2.9                 |
| Comparative Example 6 | 2.9                         | 3.8                 |
| Comparative Example 7 | 2.8                         | 3.9                 |
| Comparative Example 8 | 3.3                         | 3.5                 |

[0095]

As shown in Table 8, the powder foundations of Examples 5 to 13 are found excellent in both of the smooth cosmetic application at the time of application and the cosmetic durability after application as compared with the powder foundations of Comparative Examples 5 to 8.

[0096]

Examples 14 to 22

(Pressed powder)

The components of the compositions shown in Table 9 and Table 10 were mixed by a Henshel mixer at 1,500 rpm for 1 minute and pulverized by a pulverizer using a round mesh with 0.7 to 1.0 mm mesh holes. Next, the pulverized products were mixed with oil agents by a Henshel mixer at 1,500 rpm for 10 minutes and successively pulverized by a pulverizer using a herringbone type mesh with a size of 1.5 to 2 mm and press-compacted to obtain pressed powder foundations. The compositions of the powder foundations of Examples 14 to 18 are shown in Table 9 and the compositions of the powder foundations of Examples 19 to 22 are shown in Table 10.

[0097]

[Table 9]

| Component |                      | Example |      |      |      |      |
|-----------|----------------------|---------|------|------|------|------|
|           |                      | 14      | 15   | 16   | 17   | 18   |
| Powder    | Pigment of Example 1 | 1       | -    | -    | 25   | -    |
|           | Pigment of Example 2 | -       | 1    | -    | -    | 25   |
|           | Pigment of Example 3 | -       | -    | 1    | -    | -    |
|           | Talc                 | 69.8    | 69.8 | 69.8 | 45.8 | 45.8 |
|           | Sericite             | 10      | 10   | 10   | 10   | 10   |
|           | Titanium dioxide     | 3       | 3    | 3    | 3    | 3    |
|           | Yellow iron oxide    | 3       | 3    | 3    | 3    | 3    |
|           | Nylon powder         | 5       | 5    | 5    | 5    | 5    |
|           | Methylparaben        | 0.2     | 0.2  | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| Oil agent | Squalen              | 2       | 2    | 2    | 7    | 7    |
|           | Silicone oil         | 3       | 3    | 3    | 4    | 4    |
|           | Liquid paraffin      | 3       | 3    | 3    | 3    | 3    |

[0098]

[Table 10]

| Component |                      | Example |      |      |      |
|-----------|----------------------|---------|------|------|------|
|           |                      | 19      | 20   | 21   | 22   |
| Powder    | Pigment of Example 1 | -       | 35   | -    | -    |
|           | Pigment of Example 2 | -       | -    | 35   | -    |
|           | Pigment of Example 3 | 25      | -    | -    | 35   |
|           | Talc                 | 45.8    | 35.8 | 35.8 | 35.8 |
|           | Mica                 | 10      | 10   | 10   | 10   |
|           | Titanium dioxide     | 3       | 3    | 3    | 3    |
|           | Yellow iron oxide    | 3       | 3    | 3    | 3    |
|           | Nylon powder         | 5       | 5    | 5    | 5    |
|           | Methylparaben        | 0.2     | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| Oil agent | Squalen              | 7       | 7    | 7    | 7    |
|           | Silicone oil         | 4       | 4    | 4    | 4    |
|           | Liquid paraffin      | 3       | 3    | 3    | 3    |

[0099]

Comparative Examples 9 to 12

(Pressed powder)

Pressed powders of Comparative Examples 9 to 12 were obtained in the same manner as Examples 14 to 22, using the components of the compositions shown in Table 11.

[0100]

[Table 11]



| Component |                                  | Comparative Example |      |      |      |
|-----------|----------------------------------|---------------------|------|------|------|
|           |                                  | 9                   | 10   | 11   | 12   |
| Powder    | Pigment of Comparative Example 1 | -                   | 25   | -    | -    |
|           | Pigment of Comparative Example 2 | -                   | -    | 25   | -    |
|           | Pigment of Comparative Example 3 | -                   | -    | -    | 25   |
|           | Sericite                         | 20                  | -    | -    | -    |
|           | Kaolin                           | 5                   | -    | -    | -    |
|           | Talc                             | 45.8                | 45.8 | 45.8 | 45.8 |
|           | Mica                             | 10                  | 10   | 10   | 10   |
|           | Titanium dioxide                 | 3                   | 3    | 3    | 3    |
|           | Yellow iron oxide                | 3                   | 3    | 3    | 3    |
|           | Nylon powder                     | 5                   | 5    | 5    | 5    |
|           | Methylparaben                    | 0.2                 | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| Oil agent | Squalen                          | 2                   | 2    | 2    | 2    |
|           | Silicone oil                     | 3                   | 3    | 3    | 3    |
|           | Liquid paraffin                  | 3                   | 3    | 3    | 3    |

[0101]

With respect to the pressed powders of Examples 14 to 22 and the pressed powders of Comparative Examples 9 to 12 obtained in the above-mentioned manner, the smooth cosmetic application at the time of application and cosmetic durability three hours after application were evaluated by 20 panelists of make-up experts by the sensory tests in the same manner for the

above-mentioned powder foundations. The results are shown in Table 12.

[0102]

[Table 12]

|                        | Pressed powder              |                     |
|------------------------|-----------------------------|---------------------|
|                        | Smooth cosmetic application | Cosmetic durability |
| Example 14             | 3.8                         | 3.8                 |
| Example 15             | 3.7                         | 3.9                 |
| Example 16             | 3.7                         | 3.8                 |
| Example 17             | 4.5                         | 4.1                 |
| Example 18             | 4.5                         | 4.2                 |
| Example 19             | 4.5                         | 4.1                 |
| Example 20             | 4.7                         | 4.3                 |
| Example 21             | 4.5                         | 4.2                 |
| Example 22             | 4.5                         | 4.4                 |
| Comparative Example 9  | 3.6                         | 2.0                 |
| Comparative Example 10 | 2.5                         | 3.7                 |
| Comparative Example 11 | 2.3                         | 3.7                 |
| Comparative Example 12 | 2.2                         | 3.2                 |

[0103]

As shown in Table 12, the pressed powders of Examples 14 to 22 are found excellent in both of the smooth cosmetic application at the time of application and the cosmetic durability after application as compared with the pressed powders of Comparative Examples 9 to 12.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平6-192594

(43) 公開日 平成6年(1994)7月12日

| (51) Int.Cl. <sup>5</sup> | 識別記号  | 庁内整理番号   | F I | 技術表示箇所 |
|---------------------------|-------|----------|-----|--------|
| C 0 9 C 3/12              | P C H | 6904-4 J |     |        |
| A 6 1 K 7/02              | P     | 9164-4 C |     |        |
| C 0 9 C 1/40              | P B B | 6904-4 J |     |        |
|                           | P B C | 6904-4 J |     |        |
| 3/06                      | P B T | 6904-4 J |     |        |

審査請求 未請求 請求項の数5(全13頁)

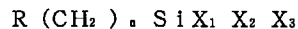
|              |                 |          |   |
|--------------|-----------------|----------|---|
| (21) 出願番号    | 特願平5-23671      | (71) 出願人 | 000215800<br>テイカ株式会社<br>大阪府大阪市大正区船町1丁目3番47号 |
| (22) 出願日     | 平成5年(1993)1月18日 | (71) 出願人 | 000113470<br>ポーラ化成工業株式会社<br>静岡県静岡市弥生町6番48号  |
| (31) 優先権主張番号 | 特願平4-40417      | (72) 発明者 | 宮崎 俊雅<br>大阪市大正区船町1丁目3番47号 テイカ株式会社内          |
| (32) 優先日     | 平4(1992)1月29日   | (72) 発明者 | 大磯 由香<br>大阪市大正区船町1丁目3番47号 テイカ株式会社内          |
| (33) 優先権主張国  | 日本 (J P)        | (74) 代理人 | 弁理士 三輪 鐵雄                                   |

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 撥水撥油性顔料およびそれを含有した粉体化粧料

(57) 【要約】

【目的】 撥水性および撥油性が優れ、透明感があり、化粧料に配合して皮膚に塗布した場合の伸び、感触、密着性が良好な撥水撥油性顔料およびそれを含有した粉体\*



(式中、Rは炭素数1~12のパーフルオロアルキル基を表し、nは1~5の整数である。X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>はアルコキシ基、ハロゲン基またはアルキル基であり、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>は同一でもよく、また異なっ

\*化粧料を提供する。

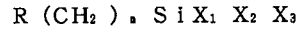
【構成】 板状無機粉体の周囲を上記板状無機粉体に対して1~10重量%の無機酸化物で被覆し、さらにその表面を一般式(I)

(I)

ていてもよい。ただし、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>のすべてがアルキル基の場合は除く)で表されるパーフルオロアルキルシランで処理して、撥水撥油性顔料を構成し、その撥水撥油性顔料を含有させて粉体化粧料を構成する。

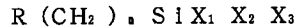
## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 板状無機粉体の周囲を上記板状無機粉体\*



(式中、Rは炭素数1～12のパーフルオロアルキル基を表し、nは1～5の整数である。X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>はアルコキシ基、ハロゲン基またはアルキル基であり、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>は同一でもよく、また異なっているいてもよい。ただし、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>のすべてがアルキル基の場合は除く)で表されるパーフルオロアルキルシランで処理してなる撥水撥油性顔料。

※10



(式中、Rは炭素数1～12のパーフルオロアルキル基を表し、nは1～5の整数である。X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>はアルコキシ基、ハロゲン基またはアルキル基であり、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>は同一でもよく、また異なっているいてもよい。ただし、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>のすべてがアルキル基の場合は除く)で表されるパーフルオロアルキルシランで処理してなる撥水撥油性顔料を含有した粉体化粧料。

【請求項4】 板状無機粉体がセリサイトまたは雲母であり、無機酸化物が二酸化チタンである請求項3記載の粉体化粧料。

【請求項5】 撥水撥油性顔料の含有量が粉体化粧料の全体中において1～90重量%である請求項3または4記載の粉体化粧料。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、撥水撥油性顔料およびそれを含有した粉体化粧料に関する。さらに詳しくは、本発明は、板状無機粉体の周囲を無機酸化物で被覆し、さらにその表面をパーフルオロアルキルシランで処理してなる撥水性および撥油性が優れた撥水撥油性顔料と、その撥水撥油性顔料を含有することにより、なめらかなすべり感と密着感を有し、化粧もち、化粧のりが優れた粉体化粧料に関する。

【0002】

【従来の技術】雲母、タルクなどの親水性無機粉体の疎水化に関しては、従来から多くの検討がなされており、たとえば親水性無機粉体の表面を脂肪酸、ロジン、シリコーン油などで処理して、無機粉体の表面を撥水性に改質することが行われている。

【0003】また、無機粉体の表面に撥水性と撥油性を付与する場合には、無機粉体の表面をフルオロアルキルジ(オキシエチル)アミンリン酸塩エステルで表面処理すること(特開昭62-250074号公報)や、シリカの表面をパーフルオロアルキル基を有するシラザン化合物で処理すること(特開平2-175759号公報)などが提案されている。

【0004】さらに、無機粉体の表面をパーフルオロアルキルシランで処理し、それを化粧料に配合することも

\*に対して1～10重量%の無機酸化物で被覆し、さらにその表面を下記の一般式(I)

(I)

※【請求項2】 板状無機粉体がセリサイトまたは雲母であり、無機酸化物が二酸化チタンである請求項1記載の撥水撥油性顔料。

【請求項3】 板状無機粉体の周囲を上記板状無機粉体に対して1～10重量%の無機酸化物で被覆し、さらにその表面を下記の一般式(I)

(I)

提案されている(特開平2-218603号公報)。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、セリサイト、雲母、タルクなどの板状無機粉体に、直接パーフルオロアルキルシランを処理した場合、パーフルオロアルキルシランと板状無機粉体との反応性が悪いいため、撥水性は有するものの、撥油性の優れた顔料が得られないという問題があった。

【0006】また、上記のように板状無機粉体に直接パーフルオロアルキルシランを処理した顔料を化粧料中に含有させた場合、耐皮脂性の向上が期待できないのみならず、板状無機粉体固有の特性である伸び、拡がりが悪化し、かつ肌への密着性も低下して、化粧もち、化粧のりの優れた化粧料が得られないという問題があった。

【0007】一方、二酸化チタン、アルミナなどの無機酸化物は、パーフルオロアルキルシランとの反応性が良く、その表面をパーフルオロアルキルシランで処理した場合は、セリサイトや雲母などの板状無機粉体の表面を直接パーフルオロアルキルシランで処理した場合に比べて、撥油性が優れた顔料を得ることができる。

【0008】そこで、板状無機粉体の周囲を二酸化チタンなどの無機酸化物で被覆し、さらにその表面をパーフルオロアルキルシランで処理することによって、撥油性が優れた板状顔料を得ることができるものと考えられる。

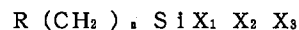
【0009】また、前記特開平2-218603号公報にも、雲母の周囲を二酸化チタンで被覆したチタン被覆雲母の表面をパーフルオロアルキルシランで処理した例が開示されている。

【0010】しかし、上記特開平2-218603号公報は、パーフルオロアルキルシランで表面処理する際に雲母の周囲を二酸化チタンで被覆しておくことが撥油性を高めるという認識をもってなされたものではなく、上記のチタン被覆雲母もパーフルオロアルキルシランで表面処理される多数の無機有機顔料のうちの一例としてたまたま例示されているだけにすぎない。

【0011】また、上記特開平2-218603号公報において、使用されているチタン被覆雲母は、一般的に市販されている反射光の干渉作用により生じる真珠光沢

を強力に発現させるために二酸化チタンの被覆量を多くしたものであり、そのため板状無機粉体の有する透明感が損なわれていて、日焼け止めのファンデーションなどのように光輝感が出ると不都合な化粧料には適しておらず、また、厚い二酸化チタンの被覆層のために、板状無機粉体の有する伸びや感触の良さも損なわれてしまっている。

【0012】したがって、本発明は、干渉による真珠光沢や光輝感が実質上発現せず、かつ化粧料に配合して皮膚に塗布したときの伸び、感触および密着性の良さが保持されていて、しかも撥水性および撥油性が優れた撥水撥油性顔料を提供するとともに、それを含有した化粧料\*



(式中、Rは炭素数1~12のパーフルオロアルキル基を表し、nは1~5の整数である。X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>はアルコキシ基、ハロゲン基またはアルキル基であり、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>は同一でもよく、また異なっているてもよい。ただし、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>のすべてがアルキル基の場合は除く)で表されるパーフルオロアルキルシランで処理してなる撥水撥油性顔料と、それを含有した粉体化粧料に関する。

【0015】以下、本発明を詳細に説明する。

【0016】本発明の撥水撥油性顔料において、板状無機粉体の周囲を被覆する無機酸化物は、その表面に処理されるパーフルオロアルキルシランとの反応性が優れていて、得られる顔料が撥油性が優れたものにする要因となるものである。

【0017】そして、この無機酸化物は、その被覆量が板状無機粉体に対して1~10重量%の範囲内であって、板状無機粉体の有する透明度や、伸び、感触、密着性の良さなどを損なわない。

【0018】上記無機酸化物の表面に処理したパーフルオロアルキルシランは、それ自身、優れた撥水性および撥油性を有していて、得られる顔料に優れた撥水性および撥油性を付与する。

【0019】したがって、本発明の撥水撥油性顔料は、撥水性および撥油性が優れていて、しかも板状無機粉体が有していた透明感や、化粧料に配合して皮膚に塗布したときの伸び、感触、密着性の良さを保持している。

【0020】本発明の撥水撥油性顔料において、基材となる板状無機粉体は、板状で透明性を有するものであれ※



(式中、Rは炭素数1~12のパーフルオロアルキル基を表し、nは1~5の整数である。X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>はアルコキシ基、ハロゲン基またはアルキル基であり、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>は同一でもよく、また異なっているてもよい。ただし、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>およびX<sub>3</sub>のすべてがアルキル基の場合は除く)で表されるものである。

【0026】上記一般式(I)で表されるパーフルオロ

\*ち、化粧料のりが優れた粉体化粧料を提供することを目的とする。

【0013】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記目的を達成するため鋭意研究を重ねた結果、セリサイトなどの板状無機粉体の周囲を特定量の無機酸化物で被覆し、さらにその表面をパーフルオロアルキルシランで処理するときは、上記目的が容易に達成され得ることを見だし、本発明を完成するにいたった。

【0014】すなわち、本発明は、板状無機粉体の周囲を上記板状無機粉体に対して1~10重量%の無機酸化物で被覆し、さらにその表面を下記の一般式(I)

(I)

※ばよく、この板状無機粉体としては、たとえばセリサイト、雲母、タルクなどの天然産の板状無機粉体や、フッ素四ケイ素雲母、テニオライトなどの人工雲母、ガラスフレークなどの人工の板状無機粉体などが好適に使用される。

【0021】そして、この板状無機粉体は、平均粒径で3~50μm程度の大きさのものが適している。

【0022】無機酸化物としては、パーフルオロアルキルシランとの反応性が良好なものであればよく、たとえば二酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウム、アルミナシリカ、アルミナジルコニアなどが好適に使用される。

【0023】本発明においては、この無機酸化物の被覆量を板状無機粉体に対して1~10重量%にするが、これは次の理由によるものである。すなわち、無機酸化物の被覆量が板状無機粉体に対して1重量%より少ない場合は、その表面に処理されるパーフルオロアルキルシランとの十分な反応性が得られず、そのため撥油性が向上しない。また、無機酸化物の被覆量が板状無機粉体に対して10重量%より多くなると、板状無機粉体の有する透明感や、化粧料に配合して皮膚に塗布したときの伸び、感触、密着性の良さなどが損なわれるようになる。

【0024】この無機酸化物の板状無機粉体への被覆方法としては、たとえば、硫酸チタニルなどの無機酸化物を構成する金属の水溶性塩の液中に板状無機粉体の水懸濁液を添加し、熱加水分解を行って、板状無機粉体の周囲に無機酸化物を析出させる方法などが採用される。

【0025】本発明において使用するパーフルオロアルキルシランは、前記のように、一般式(I)

(I)

アルキルシランにおいて、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、X<sub>3</sub>で表されるアルコキシ基、ハロゲン、アルキル基のうち、アルコキシ基とハロゲン基が板状無機粉体の周囲を被覆する無機酸化物との反応性を発現する要因となるものである。

【0027】これらのR、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、X<sub>3</sub>などについて具体的に例示すると、RとしてはたとえばCF<sub>3</sub>、C<sub>2</sub>F<sub>5</sub>、C<sub>4</sub>F<sub>9</sub>、C<sub>8</sub>F<sub>17</sub>、C<sub>12</sub>F<sub>25</sub>などが挙げられ

る。また、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_3$ としては、Cl、Br、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、メチル、エチル、プロピルなどが挙げられる。

【0028】そして、一般式(I)で示されるパーフルオロアルキルシランの具体例を例示すると、たとえば $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2Si(OCH_3)_3$ 、 $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2SiCl_3$ 、 $CF_3(CF_2)_7CH_2CH_2Si(OCH_3)_3$ 、 $CF_3(CF_2)_7CH_2SiCH_3(OCH_3)_2$ 、 $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2CH_2Si(OCH_2CH_3)_3$ 、 $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2SiCH_3(OCH_2CH_3)_2$ 、 $CF_3CH_2CH_2SiCl_3$ 、 $CF_3CF_2CH_2CH_2Si(OCH_3)_3$ 、 $CF_3(CF_2)_3CH_2CH_2Si(OCH_3)_3$ などが好適なものとして挙げられる。

【0029】この一般式(I)で表されるパーフルオロアルキルシランの無機酸化物被覆板状無機粉体(周囲を無機酸化物で被覆した板状無機粉体)に対する処理量は、板状無機粉体の種類、比表面積、板状無機粉体の周囲を被覆する無機酸化物の種類などによっても異なるが、一般的には、無機酸化物被覆板状無機粉体に対して0.1~50重量%、特に3~20重量%が好ましい。

【0030】すなわち、一般式(I)で表されるパーフルオロアルキルシランが無機酸化物被覆板状無機粉体に対して0.1重量%より少ない場合は十分な撥水性および撥油性が得られず、また一般式(I)で表されるパーフルオロアルキルシランが無機酸化物被覆板状無機粉体に対して50重量%より多くなると化粧料に配合して皮膚に塗布したときの伸び、感触などが悪くなる。

【0031】無機酸化物被覆板状無機粉体への一般式(I)で表されるパーフルオロアルキルシランの処理方法は、たとえば、ボールミル、サンドグライNDERミル、ニーダー、ディスパーなどの混合攪拌装置内で、上記無機酸化物被覆板状無機粉体を溶剤と混合しながら、その中に一般式(I)で表されるパーフルオロアルキルシランを添加し、均一に分散させた後、常圧または減圧下で加熱して乾燥し、溶剤を除去することによって行われる。

【0032】つぎに、本発明の粉体化粧料について詳細に説明する。

【0033】本発明の粉体化粧料には、その全体中において前記した撥水撥油性顔料が好ましくは1~90重量%、特に好ましくは3~30重量%含有される。

【0034】すなわち、粉体化粧料中の撥水撥油性顔料の含有量が1重量%より少ない場合は、化粧膜に対する撥水性、撥油性の付与について多くを望めず、また伸び、拡がり、密着性の良さに由来する化粧もちや化粧のりの向上もあまり期待できない。粉体化粧料中の撥水撥油性顔料の含有量の上限は必ずしも制限的ではないが、粉体化粧料に配合される他の成分、たとえば油分、撥水

撥油性顔料以外の顔料などとの関係から90重量%以下にとどめることが好ましい。

【0035】なお、本発明にいう粉体化粧料とは、配合された油分の分散状態がベディキュラ領域ないしはファニキュラ領域に属するものをいい、顔料および/または粉体の含量が約55重量%以上のものである。

【0036】そして、本発明では、前記の撥水撥油性顔料を含有させて上記のような状態の粉体化粧料にすることにより、撥水撥油性を有し、化粧もち、化粧のりの効果を充分に発揮し得る粉体化粧料を提供している。

【0037】このようにして提供される粉体化粧料の具体例としては、たとえばプレストパウダー、パウダーファンデーション、フェースパウダー、ツウウェイケーキ、パウダーアイカラー、パウダーチーク、パウダーリップなどのメイクアップ化粧料のほか、ダスティングパウダー、タルカムパウダー、ベビーパウダーなどを挙げることができる。

【0038】さらに、本発明の粉体化粧料には、前記必須成分としての撥水撥油性顔料のほか、所望により各種の粉体または顔料、油剤、薬効成分、防腐剤、香料などを配合することができる。

【0039】

【発明の効果】本発明の撥水撥油性顔料は、撥水性および撥油性が優れているので、化粧料に配合して皮膚に塗布した場合、汗、涙、雨などによる化粧くずれを防止することができる。

【0040】また、本発明の撥水撥油性顔料は、その基材の板状無機粉体の有する透明性や、伸び、感触、密着性の良さなどを保持しているため、化粧料に配合した場合、化粧料の有する色調に影響を与えず、また、皮膚上での伸び、感触の良さ、化粧のりなどを向上させる。

【0041】したがって、上記撥水撥油性顔料を含有した本発明の粉体化粧料は、該撥水撥油性顔料の有する優れた撥水性および撥油性と、その基材である板状無機粉体の有する透明性、伸び、感触、密着性の良さにより、皮膚に塗布したときに、なめらかなすべり感と密着感があり、化粧もち、化粧のりが優れている。

【0042】さらに、本発明の撥水撥油性顔料は、上記のような化粧料ばかりではなく、たとえば超耐水性塗料、氷結防止塗料、フッ素樹脂用フィラーなどの撥水性や撥油性が必要とされる用途にも好適に使用することができる。

【0043】

【実施例】つぎに、実施例を挙げて本発明をより具体的に説明する。ただし、それらの実施例は本発明を限定するものではない。なお、実施例1~4では本発明の撥水撥油性顔料について説明し、実施例5~22では本発明の粉体化粧料について説明する。また、実施例に先立ち、実施例1および実施例2で使用する二酸化チタン3%被覆セリサイト(周囲を二酸化チタンで被覆したセリ

サイトで、二酸化チタンの被覆量がセリサイトに対して3重量%であるもの)および二酸化チタン5%被覆セリサイト(周囲を二酸化チタンで被覆したセリサイトで、二酸化チタンの被覆量がセリサイトに対して5重量%であるもの)の製造をそれぞれ参考例1および参考例2として示す。

#### 【0044】参考例1

硫酸チタニル水溶液( $\text{TiO}_2$  換算濃度=9g/l) 1リットルの中に市販のセリサイト(平均粒径 $5\mu\text{m}$ ) 291gを投入し、攪拌しながら加熱して沸騰させ、この状態を3時間維持した。上記加熱終了後、得られた分散液を濾過、洗浄して、チタン酸化物被覆セリサイトを10得た。得られたチタン酸化物被覆セリサイトを水に再分散させ、その再分散液を攪拌しながら60℃に加熱し、苛性ソーダ水溶液でpHが7.0になるまで中和した後、さらに30分間攪拌してから濾過、洗浄した。

【0045】得られた生成物を乾燥した後、800℃で仮焼して、二酸化チタン3%被覆セリサイトを10得た。

#### 【0046】参考例2

硫酸チタニル水溶液の $\text{TiO}_2$  換算濃度を15g/lにし、投入するセリサイトを285gにしたほかは、参考例1と同様に処理して、二酸化チタン5%被覆セリサイトを10得た。

#### 【0047】実施例1

内容積1リットルの卓上ニーダーにトルエン250gを入れ、攪拌しながらパーフルオロアルキルシラン〔東芝シリコン株式会社製のTSL-8233(商品名)で、 $\text{CF}_3(\text{CF}_2)_7\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$ 〕を5g添加し、その中に参考例1で製造した二酸化チタン3%被覆セリサイトを100g投入し、充分に攪拌してスラリーにした。

【0048】このスラリーを110℃に加熱し、200mmHgに減圧しながらトルエンを除去し、150℃で3時間キュアリングした後、微粉末になるまで粉碎した。

【0049】上記のようにして得られた撥水撥油性顔料におけるパーフルオロアルキルシランの量は二酸化チタン3%被覆セリサイトに対して5重量%であった。

#### 【0050】実施例2

内容積1リットルのサンドグラインダーミルにトルエン350g、二酸化チタン5%被覆セリサイト50gおよび実施例1と同様のパーフルオロアルキルシラン2.5gを入れ、20分間混合して、スラリーにした。

【0051】得られたスラリーを卓上ニーダーに移し、110℃に加熱し、以後、実施例1と同様に処理して、撥水撥油性顔料を得た。

【0052】得られた撥水撥油性顔料におけるパーフルオロアルキルシランの量は二酸化チタン5%被覆セリサイトに対して5重量%であった。

#### 【0053】実施例3

実施例1における二酸化チタン3%被覆セリサイトに代えて、二酸化チタン5%被覆雲母〔テイカ株式会社製のSP-301(商品名)〕を用いたほかは、実施例1と同様に処理して、撥水撥油性顔料を得た。

【0054】得られた撥水撥油性顔料におけるパーフルオロアルキルシランの量は二酸化チタン5%被覆雲母に対して5重量%であった。

#### 【0055】比較例1

内容積1リットルのニーダーにトルエン283gを入れ、攪拌しながら実施例1の同様のパーフルオロアルキルシランを7.3g添加し、その中に市販のセリサイト(参考例1で用いた二酸化チタンを被覆する前のもの)を146g投入し、10分間混合した後、110℃に加熱し、200mmHgに減圧しながらトルエンを除去して、150℃で3時間キュアリングした後、粉碎した。

#### 【0056】比較例2

内容積1リットルのサンドグラインダーミルにトルエン350g、二酸化チタン〔テイカ株式会社製のJA-1(商品名)〕50gおよび実施例1と同様のパーフルオロアルキルシラン2.5gを入れ、20分間混合して、スラリーにした。

【0057】得られたスラリーを卓上ニーダーに移し、110℃に加熱し、200mmHgに減圧しながらトルエンを除去し、150℃で3時間キュアリングした後、粉碎した。

#### 【0058】比較例3

実施例1で用いたパーフルオロアルキルシラン5gに代えて、メチルヒドロジエンポリシロキサン2gを用いたほかは、実施例1と同様に処理した。

【0059】つぎに、上記のようにして得られた実施例1~3の撥水撥油性顔料、比較例1~3の顔料および未処理試料1~3について、撥水性および撥油性を調べた。その結果を後記の表1~表3に示す。

【0060】未処理試料1はセリサイトであり、これは参考例1において二酸化チタンで被覆する前のセリサイトと同じものである。未処理試料2は実施例1で用いた二酸化チタン3%被覆セリサイトと同じものであり、未処理試料3は実施例3で用いた二酸化チタン5%被覆雲母〔テイカ株式会社製のSP-301(商品名)〕と同じものである。

【0061】撥水性は水そのものに対して調べたものであるが、撥油性はオレイン酸およびトルエンに対して調べたものである。

【0062】撥水性および撥油性の試験および評価方法は次の通りである。

【0063】＜試験および評価方法＞各試料0.1gをそれぞれ試験管にとり、その中に溶媒(撥水性試験の場合は水であり、撥油性試験の場合はオレイン酸およびトルエン)を加えて分散させ、表1~表3に記載の特定時間静置後、溶媒の上に浮上している粉体の厚さ( $L_1$ )

と溶媒の下に沈降している粉体の厚さ ( $L_2$ ) とをそれぞれ測定し、下記の式に示すように、全体の厚さ ( $L_1 + L_2$ ) に対する浮上している粉体の厚さ ( $L_1$ ) の比率を算出し、それを撥水性指数または撥油性指数としてその大きさを評価する。

$$[L_1 / (L_1 + L_2)] \times 10$$

【0064】すなわち、上記式より算出される撥水性指数または撥油性指数が10であるときは、粉体が溶媒の\*

\*上に完全に浮上しており、撥水性または撥油性が優れていることを示している。また、上記式より算出される撥水性指数または撥油性指数が0であるときは、粉体が溶媒の下に完全に沈降しており、撥水性あるいは撥油性がないことを示している。つまり、撥水性指数または撥油性指数が大きいほど撥水性または撥油性が優れている。

【0065】

【表1】

|        | 撥 水 性 指 数 |      |      |      |
|--------|-----------|------|------|------|
|        | 1時間静置     | 1日静置 | 2日静置 | 1月静置 |
| 実施例1   | 10        | 10   | 10   | 10   |
| 実施例2   | 10        | 10   | 10   | 10   |
| 実施例3   | 10        | 10   | 10   | 10   |
| 比較例1   | 10        | 10   | 10   | 10   |
| 比較例2   | 10        | 10   | 10   | 9    |
| 比較例3   | 10        | 10   | 10   | 9    |
| 未処理試料1 | 0         | 0    | 0    | 0    |
| 未処理試料2 | 0         | 0    | 0    | 0    |
| 未処理試料3 | 0         | 0    | 0    | 0    |

【0066】表1に示すように、実施例1～3は、未処理試料1～3に比べて撥水性指数が高く、撥水性が優れている。ただし、撥水性に関しては、実施例1～3と比※

※比較例1～3との間に差はほとんど認められない。

【0067】

【表2】

|        | 撥 油 性 指 数 (対オレイン酸) |      |      |      |
|--------|--------------------|------|------|------|
|        | 1時間静置              | 1日静置 | 2日静置 | 1月静置 |
| 実施例1   | 10                 | 10   | 10   | 10   |
| 実施例2   | 10                 | 10   | 10   | 10   |
| 実施例3   | 10                 | 10   | 10   | 10   |
| 比較例1   | 6                  | 0    | 0    | 0    |
| 比較例2   | 10                 | 10   | 10   | 10   |
| 比較例3   | 7                  | 3    | 0    | 0    |
| 未処理試料1 | 5                  | 2    | 0    | 0    |
| 未処理試料2 | 6                  | 0    | 0    | 0    |
| 未処理試料3 | 6                  | 1    | 0    | 0    |

【0068】表2に示すように、実施例1～3は、撥油性指数が高く、オレイン酸に対して二酸化チタンの表面をパーフルオロアルキルシランで処理した比較例2と同

等の優れた撥油性を有している。

【0069】

【表3】



|        | 撥油性指数 (対トルエン) |      |      |      |
|--------|---------------|------|------|------|
|        | 1時間静置         | 1日静置 | 2日静置 | 1月静置 |
| 実施例1   | 10            | 10   | 10   | 10   |
| 実施例2   | 10            | 10   | 10   | 10   |
| 実施例3   | 10            | 10   | 10   | 10   |
| 比較例1   | 0             | 0    | 0    | 0    |
| 比較例2   | 10            | 10   | 10   | 10   |
| 比較例3   | 8             | 4    | 0    | 0    |
| 未処理試料1 | 0             | 0    | 0    | 0    |
| 未処理試料2 | 0             | 0    | 0    | 0    |
| 未処理試料3 | 0             | 0    | 0    | 0    |

【0070】表3に示すように、実施例1～3は、撥油性指数が高く、トルエンに対して二酸化チタンの表面をパーフルオロアルキルシランで処理した比較例2と同等の優れた撥油性を有している。

【0071】上記表1～表3に示す結果から明らかなように、本発明の実施例1～3の撥水撥油性顔料は、撥水性指数、撥油性指数とも高く、撥水性および撥油性が優れていた。

【0072】つぎに、本発明の撥水撥油性顔料の透明性について明らかにする。この透明性を明らかにするにあたっては、下記に示すように、実施例4として二酸化チタン10%被覆セリサイトの表面をパーフルオロアルキルシランで処理した撥水撥油性顔料を製造し、また比較例4として二酸化チタン20%被覆セリサイトの表面をパーフルオロアルキルシランで処理した顔料を製造した。

#### 【0073】実施例4

まず、参考例1に準じてセリサイトの周囲に二酸化チタンを被覆して二酸化チタン10%被覆セリサイト（周囲を二酸化チタンで被覆したセリサイトで、二酸化チタンの被覆量がセリサイトに対して10重量%であるもの）を製造し、この二酸化チタン10%被覆セリサイトを実施例1における二酸化チタン3%被覆セリサイトに代えて用いたほかは、実施例1と同様に処理して、撥水撥油性顔料を得た。得られた撥水撥油性顔料におけるパーフルオロアルキルシランの量は二酸化チタン10%被覆セリサイトに対して5重量%であった。

\*

#### <塗料配合および調製>

|                     |     |
|---------------------|-----|
| ニトロセルロース液（固形分20.8%） | 30g |
| 試料                  | 2g  |
| アルミナビーズ             | 50g |

（顔料固形分重量／樹脂固形分重量＝0.3）

【0079】塗料の調製は、上記配合で各試料を容器内50に入れ、20分間ペイントコンディショナーで分散する

#### \*【0074】比較例4

まず、参考例1に準じてセリサイトの周囲に二酸化チタンを被覆して二酸化チタン20%被覆セリサイト（周囲を二酸化チタンで被覆したセリサイトで、二酸化チタンの被覆量がセリサイトに対して20重量%であるもの）を製造し、この二酸化チタン20%被覆セリサイトを実施例1における二酸化チタン3%被覆セリサイトに代えて用いたほかは、実施例1と同様に処理して、撥水撥油性顔料を得た。得られた撥水撥油性顔料におけるパーフルオロアルキルシランの量は二酸化チタン20%被覆セリサイトに対して5重量%であった。

【0075】透明性の測定方法および結果は次に示す通りである。

【0076】＜透明性の測定方法＞まず、試料としては板状無機粉体がセリサイトである実施例1～2、実施例4、比較例1および比較例4を用い、セリサイトの周囲を被覆する二酸化チタンの被覆量の変化に伴って可視光線に対する透過率がどのように変化するかを調べ、それに基づいて本発明の実施例1～2および実施例4の撥水撥油性顔料の透明性を明らかにする。

【0077】各試料をそれぞれ2gずつ用い、下記の配合でニトロセルロース塗料を調製し、得られた塗料を1.5ミルのアプリケーションャーによってセロハン紙に塗布し、乾燥後の塗膜の波長400nmおよび500nmにおける光透過率を積分球付きの分光光度計で測定した。

#### 【0078】

ことによって行った。

\*ことを示している。

【0080】光透過率の測定結果を表4に示す。表4に示す光透過率が大きいほど、試料の透明性が優れている\*

【0081】

【表4】

|      | 二酸化チタン<br>被覆量<br>(重量%) | 光透過率 (%) |       |
|------|------------------------|----------|-------|
|      |                        | 400nm    | 500nm |
| 比較例1 | 0                      | 90       | 86    |
| 実施例1 | 3                      | 89       | 84    |
| 実施例2 | 5                      | 88       | 83    |
| 実施例4 | 10                     | 82       | 70    |
| 比較例4 | 20                     | 63       | 47    |

【0082】表4に示す結果からわかるように、セリサイトの表面を被覆する二酸化チタンの被覆量が多くなるにつれて可視光線に対する透過率が低下していくが、実施例1～2および実施例4では、高い光透過率を保持し

20

ており、十分に透明性を有する範囲内にあるといえる。  
【0083】また、二酸化チタンの被覆量が20重量%の比較例4では、光透過率が大幅に低下しており、このことから、二酸化チタンそのものの表面をパーフルオロアルキルシランで処理した比較例2は、可視光線に対する透過率が低く、透明性を有しないことがわかる。

【0084】つぎに、本発明の撥水撥油性顔料を含有した粉体化粧料の実施例について説明する。なお、成分の配合割合は重量%である。

【0085】

30

実施例5～13 (パウダーファンデーション)

表5～表6に示す組成の成分をヘンシェルミキサーを用いて1,500rpmで1分間混合し、続いて0.7～1.0mm丸穴メッシュを使用し、バルベライザーで粉碎した。つぎに、上記粉碎物を油剤と共にヘンシェルミキサーを用いて1,500rpmで10分間混合し、続いて1.5～2mmのヘリングボーン型メッシュを使用し、バルベライザーで粉碎し、プレス成形してパウダーファンデーションを得た。なお、実施例5～9のパウダーファンデーションの組成を表5に示し、実施例10～13のパウダーファンデーションの組成を表6に示す。

【0086】

【表5】

| 成 分    |          | 実 施 例 |      |      |      |      |
|--------|----------|-------|------|------|------|------|
|        |          | 5     | 6    | 7    | 8    | 9    |
| 粉<br>体 | 実施例1の顔料  | 1     | —    | —    | 20   | —    |
|        | 実施例2の顔料  | —     | 1    | —    | —    | 20   |
|        | 実施例3の顔料  | —     | —    | 1    | —    | —    |
|        | タルク      | 46.4  | 46.4 | 46.4 | 27.4 | 27.4 |
|        | セリサイト    | 5     | 5    | 5    | 5    | 5    |
|        | 二酸化チタン   | 20    | 20   | 20   | 20   | 20   |
|        | 黄酸化鉄     | 5.5   | 5.5  | 5.5  | 5.5  | 5.5  |
|        | ベンガラ     | 2.4   | 2.4  | 2.4  | 2.4  | 2.4  |
|        | 群青       | 0.5   | 0.5  | 0.5  | 0.5  | 0.5  |
|        | ナイロンパウダー | 5     | 5    | 5    | 5    | 5    |
|        | メチルバラベン  | 0.2   | 0.2  | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| 油<br>剤 | スクワラン    | 7     | 7    | 7    | 7    | 7    |
|        | シリコーンオイル | 4     | 4    | 4    | 4    | 4    |
|        | 流動パラフィン  | 3     | 3    | 3    | 3    | 3    |

【0087】

\* \* 【表6】

| 成 分    |          | 実 施 例 |      |      |      |
|--------|----------|-------|------|------|------|
|        |          | 10    | 11   | 12   | 13   |
| 粉<br>体 | 実施例1の顔料  | —     | 35   | —    | —    |
|        | 実施例2の顔料  | —     | —    | 35   | —    |
|        | 実施例3の顔料  | 20    | —    | —    | 35   |
|        | タルク      | 27.4  | 12.4 | 12.4 | 12.4 |
|        | セリサイト    | 5     | 5    | 5    | 5    |
|        | 二酸化チタン   | 20    | 20   | 20   | 20   |
|        | 黄酸化鉄     | 5.5   | 5.5  | 5.5  | 5.5  |
|        | ベンガラ     | 2.4   | 2.4  | 2.4  | 2.4  |
|        | 群青       | 0.5   | 0.5  | 0.5  | 0.5  |
|        | ナイロンパウダー | 5     | 5    | 5    | 5    |
|        | メチルバラベン  | 0.2   | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| 油<br>剤 | スクワラン    | 7     | 7    | 7    | 7    |
|        | シリコーンオイル | 4     | 4    | 4    | 4    |
|        | 流動パラフィン  | 3     | 3    | 3    | 3    |

【0088】

比較例5～8 (パウダーファンデーション)

表7に示す組成の成分を用いて、実施例5～13と同様の方法により比較例5～8のパウダーファンデーション

を得た。

【0089】

【表7】

| 成 分    |          | 比 較 例 |      |      |      |
|--------|----------|-------|------|------|------|
|        |          | 5     | 6    | 7    | 8    |
| 粉<br>体 | 比較例1の顔料  | —     | 20   | —    | —    |
|        | 比較例2の顔料  | —     | —    | 20   | —    |
|        | 比較例3の顔料  | —     | —    | —    | 20   |
|        | タルク      | 27.4  | 27.4 | 27.4 | 27.4 |
|        | セリサイト    | 25    | 5    | 5    | 5    |
|        | 二酸化チタン   | 20    | 20   | 20   | 20   |
|        | 黄酸化鉄     | 5.5   | 5.5  | 5.5  | 5.5  |
|        | ベンガラ     | 2.4   | 2.4  | 2.4  | 2.4  |
|        | 群青       | 0.5   | 0.5  | 0.5  | 0.5  |
|        | ナイロンパウダー | 5     | 5    | 5    | 5    |
|        | メチルバラベン  | 0.2   | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| 油<br>剤 | スクワラン    | 7     | 7    | 7    | 7    |
|        | シリコーンオイル | 4     | 4    | 4    | 4    |
|        | 流動パラフィン  | 3     | 3    | 3    | 3    |

【0090】上記のようにして得られた実施例5～13のパウダーファンデーションおよび比較例5～8のパウダーファンデーションについて、メイクアップ専門パネル20人により、その化粧のり、化粧もちを官能試験によって評価した。

【0091】官能評価試験の方法および評価基準は次の通りである。＜試験方法および評価基準＞各パウダーファンデーションをパネルの顔全面に塗布し、塗布時の化粧のりと塗布後3時間経過後の化粧もちについて、下記の評価基準で官能評価し、その平均値で評価する。結果を表8に示す。

【0092】化粧のりの評価基準：

5： なめらかにきれいにつく

1： つきが悪くのりが悪い

中間の4～2については、上記5と1とを基準にしてその程度に応じて評価値を決める。

【0093】化粧もちの評価基準：

5： 化粧のうき、テカリがない

1： 化粧のうき、テカリでくずれている

中間の4～2については、上記5と1とを基準にしてその程度に応じて評価値を決める。なお、テカリとは化粧膜が皮脂によるヌレ（濡れ）によって光った状態をいう。

【0094】

【表8】

|       | パウダーファンデーション |      |
|-------|--------------|------|
|       | 化粧のり         | 化粧もち |
| 実施例5  | 3.9          | 4.0  |
| 実施例6  | 4.0          | 4.1  |
| 実施例7  | 4.0          | 4.1  |
| 実施例8  | 4.2          | 4.8  |
| 実施例9  | 4.3          | 4.8  |
| 実施例10 | 4.2          | 4.8  |
| 実施例11 | 4.5          | 4.9  |
| 実施例12 | 4.3          | 4.8  |
| 実施例13 | 4.5          | 4.8  |
| 比較例5  | 3.6          | 2.9  |
| 比較例6  | 2.9          | 3.8  |
| 比較例7  | 2.8          | 3.9  |
| 比較例8  | 3.3          | 3.5  |

【0095】表8に示すように、実施例5～13のパウダーファンデーションは、比較例5～8のパウダーファンデーションに比べて、塗布時の化粧のり、塗布後の化粧もちのいずれに関しても優れていることが実証された。

【0096】実施例14～22〔プレスドパウダー〕  
表9～表10に示す組成の成分をヘンシェルミキサーを用いて1,500rpmで1分間混合し、続いて0.7～1.0mm丸穴メッシュを使用し、パルベライザーで\*

\*粉碎した。つぎに、上記粉碎物を油剤と共にヘンシェルミキサーを用いて1,500rpmで10分間混合し、続いて1.5～2mmのヘリングボーン型メッシュを使用し、パルベライザーで粉碎し、プレス成形してプレスドパウダーを得た。なお、実施例14～18のプレスドパウダーの組成を表9に示し、実施例19～22のプレスドパウダーの組成を表10に示す。

【0097】

【表9】

| 成 分    |          | 実 施 例 |      |      |      |      |
|--------|----------|-------|------|------|------|------|
|        |          | 14    | 15   | 16   | 17   | 18   |
| 粉<br>体 | 実施例1の顔料  | 1     |      |      | 25   |      |
|        | 実施例2の顔料  |       | 1    |      |      | 25   |
|        | 実施例3の顔料  |       |      | 1    |      |      |
|        | タルク      | 69.8  | 69.8 | 69.8 | 45.8 | 45.8 |
|        | セリサイト    | 10    | 10   | 10   | 10   | 10   |
|        | 二酸化チタン   | 3     | 3    | 3    | 3    | 3    |
|        | 黄酸化鉄     | 3     | 3    | 3    | 3    | 3    |
|        | ナイロンパウダー | 5     | 5    | 5    | 5    | 5    |
|        | メチルパラベン  | 0.2   | 0.2  | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| 油<br>剤 | スクワラン    | 2     | 2    | 2    | 7    | 7    |
|        | シリコーンオイル | 3     | 3    | 3    | 4    | 4    |
|        | 流動パラフィン  | 3     | 3    | 3    | 3    | 3    |

【0098】

【表10】

| 成 分    |          | 実 施 例 |      |      |      |
|--------|----------|-------|------|------|------|
|        |          | 19    | 20   | 21   | 22   |
| 粉<br>体 | 実施例1の顔料  | —     | 35   | —    | —    |
|        | 実施例2の顔料  | —     | —    | 35   | —    |
|        | 実施例3の顔料  | 25    | —    | —    | 35   |
|        | タルク      | 45.8  | 35.8 | 35.8 | 35.8 |
|        | 雲母       | 10    | 10   | 10   | 10   |
|        | 二酸化チタン   | 3     | 3    | 3    | 3    |
|        | 黄酸化鉄     | 3     | 3    | 3    | 3    |
|        | ナイロンパウダー | 5     | 5    | 5    | 5    |
|        | メチルパラベン  | 0.2   | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
|        |          |       |      |      |      |
| 油<br>剤 | スクワラン    | 7     | 7    | 7    | 7    |
|        | シリコーンオイル | 4     | 4    | 4    | 4    |
|        | 流動パラフィン  | 3     | 3    | 3    | 3    |

【0099】比較例9～12〔プレスパウダー〕 20\*得た。

表11に示す組成の成分を用いて、実施例14～22と 【0100】

同様の方法により比較例9～12のプレスパウダーを\* 【表11】

| 成 分    |          | 比 較 例 |      |      |      |
|--------|----------|-------|------|------|------|
|        |          | 9     | 10   | 11   | 12   |
| 粉<br>体 | 比較例1の顔料  | —     | 25   | —    | —    |
|        | 比較例2の顔料  | —     | —    | 25   | —    |
|        | 比較例3の顔料  | —     | —    | —    | 25   |
|        | セリサイト    | 20    | —    | —    | —    |
|        | カオリン     | 5     | —    | —    | —    |
|        | タルク      | 45.8  | 45.8 | 45.8 | 45.8 |
|        | 雲母       | 10    | 10   | 10   | 10   |
|        | 二酸化チタン   | 3     | 3    | 3    | 3    |
|        | 黄酸化鉄     | 3     | 3    | 3    | 3    |
|        | ナイロンパウダー | 5     | 5    | 5    | 5    |
|        | メチルパラベン  | 0.2   | 0.2  | 0.2  | 0.2  |
| 油<br>剤 | スクワラン    | 2     | 2    | 2    | 2    |
|        | シリコーンオイル | 3     | 3    | 3    | 3    |
|        | 流動パラフィン  | 3     | 3    | 3    | 3    |

【0101】上記のようにして得られた実施例14～22のプレスパウダーおよび比較例9～12のプレスパウダーについて、メイクアップ専門パネル20人により、その塗布時の化粧のりと塗布後3時間経過後の化粧

もちを前記パウダーファンデーションの場合と同様の方法によって官能評価した。その結果を表12に示す。

【0102】

【表12】

|       | プレスドパウダー |      |
|-------|----------|------|
|       | 化粧のり     | 化粧もち |
| 実施例14 | 3.8      | 3.8  |
| 実施例15 | 3.7      | 3.9  |
| 実施例16 | 3.7      | 3.8  |
| 実施例17 | 4.5      | 4.1  |
| 実施例18 | 4.5      | 4.2  |
| 実施例19 | 4.5      | 4.1  |
| 実施例20 | 4.7      | 4.3  |
| 実施例21 | 4.5      | 4.2  |
| 実施例22 | 4.5      | 4.4  |
| 比較例9  | 3.6      | 2.0  |
| 比較例10 | 2.5      | 3.7  |
| 比較例11 | 2.3      | 3.7  |
| 比較例12 | 2.2      | 3.2  |

【0103】表12に示すように、実施例14～22のプレスドパウダーは、比較例9～12のプレスドパウダ

ーに比べて、塗布時の化粧のり、塗布後の化粧もちのいずれに関しても優れていることが実証された。

フロントページの続き

(72)発明者 西田 修司  
 大阪市大正区船町1丁目3番47号 テイカ  
 株式会社内  
 (72)発明者 西方 和博  
 神奈川県横浜市神奈川区高島台27番地1  
 ポーラ横浜研究所内

(72)発明者 塩沢 順二  
 神奈川県横浜市神奈川区高島台27番地1  
 ポーラ横浜研究所内  
 (72)発明者 中村 直生  
 神奈川県横浜市神奈川区高島台27番地1  
 ポーラ横浜研究所内